

## 温室効果気体の変動と循環

～その理解に向けた研究の歩み～

—2012年度藤原賞受賞記念講演—

中 澤 高 清\*

### 1. はじめに

この度は日本気象学会藤原賞を頂き、大変名誉なことと心よりお礼申し上げます。受賞対象となりました業績は、長年にわたって行ってきました地球表層における温室効果気体に関する研究です。そこで本稿において、計測技術の開発から循環の理解まで、国内外の動向を交えながら、これまでの研究を振り返ってみることにします。

よく知られていますように、水蒸気や二酸化炭素といった温室効果気体は太陽放射を透過し、地球放射を強く吸収するという性質を持っており、大気にはわずかしか含まれていませんが、気候の維持・変動にとって大変重要な役割を果たしています。大気中の温室効果気体の濃度は、自然的要因による多少の変動はあったものの、過去1万年間にわたって概ね安定していました。しかし、18世紀に起こった産業革命を契機に人間活動が活発化し、それに伴って大量の温室効果気体が放出され、その大気濃度は急速に上昇しました。このような継続的な濃度増加は、大気の温室効果を強め、近い将来の気候を大きく変化させると懸念されています。地球温暖化と呼ばれているこの問題に対処するためには、地球規模での温室効果気体の変動と循環を明らかにし、将来の濃度予測と濃度増加の抑制対策を可能にする必要があります。

代表的な人為起源の温室効果気体としては、二酸化炭素 (CO<sub>2</sub>) やメタン (CH<sub>4</sub>)、一酸化二窒素 (N<sub>2</sub>O)、

クロロフルオロカーボン (CFC)、六フッ化硫黄 (SF<sub>6</sub>)、パーフルオロカーボン (PFC)、ハイドロフルオロカーボン (HFC) などが挙げられます。これらの中でCFC以降の気体はほぼ全てが人間によって作り出された物であり、その製造量や特性はよく知られています。しかし、製造量と大気への放出量は異なりますので、大気濃度を系統的に観測し、その推移を把握しておくことが重要であり、実際にそのような活動は行われています。一方、CO<sub>2</sub>やCH<sub>4</sub>、N<sub>2</sub>Oは人間活動によって発生するだけでなく、自然界に元々存在しているために、その変動や循環の理解を難しくしており、研究の対象としては大変興味深いものです。また同時に、温暖化問題にとって早急に解決すべき重要な科学的研究課題であり、私達も含めて世界の多くの研究者がこの課題に取り組んでいます。

### 2. 大気中のCO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>、N<sub>2</sub>Oとそれらの循環

大気にCO<sub>2</sub>が存在することは、1754年にイギリスのJoseph Blackによって発見されました。彼は石灰水に空気を通すと白濁し、固形物が生成されることを見つけ、原因となる気体を「固まる空気 (Fixed air)」と名付けました。この気体が炭素と酸素でできたCO<sub>2</sub>であることは、1777年にフランスのAntoine Lavoisierによって確認されています。窒素 (N<sub>2</sub>) や酸素 (O<sub>2</sub>)、アルゴン (Ar) の発見がそれぞれ1772年、1771-4年、1894年であることを考えますと、CO<sub>2</sub>は最も早い時期に発見された大気成分ということになります。大気中のCO<sub>2</sub>濃度は、既に18世紀末には化学的手法を用いて測定されており、当時は体積比でおよそ1% (10000 ppm) であると信じられていたようです。しかし、その後計測技術が改善されるとともに

\* 東北大学名誉教授、nakazawa@m.tohoku.ac.jp

—2012年10月1日受領—

—2012年12月17日受理—

測定値は低下し、産業革命以前は290 ppm 程度であると考えられていました (Callendar 1958)。一方、 $\text{CH}_4$  と  $\text{N}_2\text{O}$  は、太陽を光源とした分光観測によって発見されました。すなわち、 $\text{N}_2\text{O}$  は1938年にアメリカの Arthur Adel (Adel 1938) が、 $\text{CH}_4$  は1948年にベルギーの Marcel Migeotte (Migeotte 1948) が同定し、それぞれの気体のカラム濃度は Richard Goody と Desmond Walshaw によって350 ppb と、McMath 等によって2.3 ppm と定量されました (McMath *et al.* 1949; Goody and Walshaw 1953)。これら初期の頃の観測の結果は、その後に行われた大気の系統的観測や氷床コア分析の結果と比べると、いずれも明らかに高い濃度を示しています。

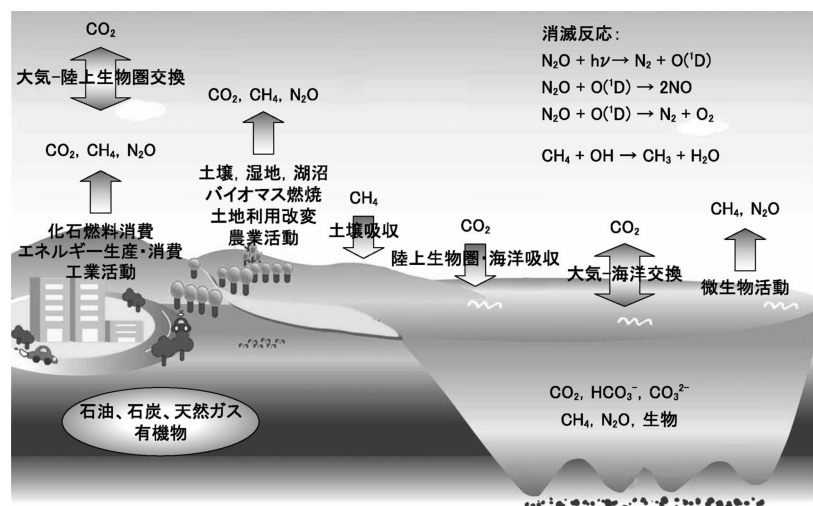
高度な計測技術を用いた温室効果気体の系統的観測は  $\text{CO}_2$  が最も早く、国際地球観測年 (IGY) を契機にして1957年に南極点で、1958年にハワイ・マウナロアで開始されました (Keeling *et al.* 1976a, b)。 $\text{CH}_4$  や  $\text{N}_2\text{O}$  については、 $\text{CO}_2$  から20年以上も遅れて1980年代に本格的な観測が行われるようになりました (Weiss 1981; Blake and Rowland 1988)。また、大気の系統的観測が行われる前の濃度については、1980年代になって特に  $\text{CO}_2$  に関して様々な復元方法が試みられましたが、極域で掘削された氷床コアから昔の空気を抽出し分析する技術が確立されたことにより、信頼するに足る結果が得られるようになりました (例えば Neftel *et al.* 1985)。

これらの大気観測や氷床コア分析によって  $\text{CO}_2$  や  $\text{CH}_4$ 、 $\text{N}_2\text{O}$  の正確な濃度が知られるに従って、濃度変動の解釈が多くの研究者の関心を集めるようになり、また1990年代に入ると循環の定量的な解明が活発に行われるようになりました。第1図に、地球表層における  $\text{CO}_2$ 、 $\text{CH}_4$ 、 $\text{N}_2\text{O}$  の循環を模式的に示します。 $\text{CO}_2$  は、光合成と呼吸・分解により大気と陸上生物圏との間で常に交換されており、山火事や干ばつが発生すると大気に放出されます。また、大気と海洋の間でも分圧差に応じて  $\text{CO}_2$

は絶えず交換されています。 $\text{CH}_4$  は、湿地や湖沼、海洋、シロアリ、山火事などから発生し、対流圏での水酸化ラジカル (OH) との反応、土壌による吸収、成層圏での OH や塩素 (Cl)、励起酸素原子 ( $\text{O}(^1\text{D})$ ) などとの反応によって消滅します。 $\text{N}_2\text{O}$  は、土壌や海洋での微生物活動によって発生し、成層圏で光解離や  $\text{O}(^1\text{D})$  との反応により消滅します。これらの循環は自然的要因によって駆動されており、循環が安定していると大気濃度も一定を保ちます。しかし、エルニーニョや火山噴火、氷期-間氷期サイクルなどに伴って気候が変化するとバランスを崩しますので、その時には大気濃度が変動します。

このような自然循環の変化に伴う濃度変動に加え、この200年間は人間活動によって大量の温室効果気体が大気に放出され続けたために、濃度が大幅に増加しました。すなわち、化石燃料燃焼や土地利用改変によって  $\text{CO}_2$  が大気に加えられ、その一部は海洋と陸上生物圏により吸収され、残りが大気に蓄積されてきました。 $\text{CH}_4$  については水田や反芻動物、天然ガスの採掘や輸送中の漏洩、埋め立て、バイオマス燃焼などによって、また  $\text{N}_2\text{O}$  については農業活動や化石燃料燃焼、工業活動、バイオマス燃焼などによって大気に放出され、その多くは上で述べた過程で消滅されましたが、これまで長期にわたって放出量が消滅量を上回ってきたため、大気中の存在量が大きく増えました。

このように、 $\text{CO}_2$  や  $\text{CH}_4$ 、 $\text{N}_2\text{O}$  は複雑な過程を経



第1図 地球表層における  $\text{CO}_2$ 、 $\text{CH}_4$ 、 $\text{N}_2\text{O}$  の循環。

て発生したり消滅したりしており、温暖化へ対処する方策を検討・立案し、それらの気候への係わりを理解するためには、地球表層における変動を把握し、それを基に循環及び自然的・人為的要因に伴う変化を定量的に解明する必要があります。

### 3. 東北大学での研究の始まり

私が温室効果気体の研究を開始したのは1977年です。大学院の頃は、気象学講座において山本義一先生及び田中正之先生の下で、室内実験を中心とした大気成分の光吸収特性に関する研究を行っていました。しかし、博士課程を終えて職員となった頃、それまでの研究が気象学にとってあまりにも基礎的であったので、より気象学に密接したテーマに拡大できないかと考えるようになりました。そうこうしているうちに、C. D. Keeling 等によるハワイ・マウナロアと南極点でのCO<sub>2</sub>観測に関する論文 (Keeling *et al.* 1976a, b) を図書館の新刊雑誌の書架上で見つけ、その内容に大変興味を引かれました。この論文がきっかけとなり、また既に退官されていましたが時々研究室にいらっしやっていた山本先生の勧めもあり、翌年に田中先生を代表者として科研費を獲得し、CO<sub>2</sub>の研究を始めることにしました。しかし、その当時は「地球温暖化」という言葉もなく（私達は「温室効果問題」と呼んでいました）、この問題はまだ科学的にも社会的にも大きな関心事となっていませんでしたので、温暖化問題を意識した本格的な温室効果気体研究は我が国においては全く行われておらず、国際的にも少数の研究者・研究機関がCO<sub>2</sub>について研究を行っていたに過ぎませんでした。そのため、「グローバルスケールの現象は日本人の手に合わないので、プロセス研究をやった方が良い」、「確信を持って論文が書けるまでには時間を要するので、大学での研究の対象にはならない」、「物理系で化学のような研究を行うのか」、「CO<sub>2</sub>の増加は人間活動によるものではなく自然現象である」、「地球は広大であり、人間の活動などで気候は変化しない」といったことを周囲の研究者から言われることもありました。このような状況でしたので、私自身、研究を始めるにあたって炭素循環解明の総論は理解していたものの、各論として具体的に何をなすべきか戸惑ったものでした。

私達はまずCO<sub>2</sub>を対象として研究を開始しましたが、その後、CH<sub>4</sub>やN<sub>2</sub>Oなどの重要性も認識し、CO<sub>2</sub>以外の温室効果気体にも研究を順次拡大して行き

ました。温室効果気体の循環を解明する手法としては基本的には二通りあります。一つ目は、ある所でフラックスを測定し、その結果を時間的・空間的に拡張するというボトムアップアプローチ、二つ目は、大気中での変動を観測し、それをモデル等で解析するというトップダウンアプローチです。前者の方法はプロセスの理解と量の評価が容易であるという利点を有しており、正攻法といえます。しかし、解明すべき対象が地球規模に及んでいることや地球表層が不均質であることを考えますと、長期にわたる観測を多地点で行う必要がありますので、大学の研究者にとっては労力的にも経費的にも時間的にも非効率な手法であり、研究の中心に据えることは困難と判断せざるを得ません。一方、後者の方法は、広域にわたる大気観測が必要であり、発生・消滅プロセスを直接的に理解し難いという欠点を持ちますが、比較的短期間にフラックスを全球規模で推定できるという利点があります。そこで研究を開始するに当たり、短期間で結果を得ることができると期待されたトップダウンアプローチを採用することにしました。研究を開始した頃は、10年くらい地球規模の大気観測を行い、その結果を取支式やモデルで解析することによって定量的な理解ができるだろうと期待していましたが、実際に研究を始めてみますと、地球の広大さと複雑さに手を焼き、結果として今日まで研究を拡大・継続することになりました。

上で述べましたように、私が温室効果気体の研究を始めるに当たって、山本先生の勧めも大きな要素となりましたが、その理由については気に留めることもなく歳月が経過しました。しかし、年を取るにつれて気になるようになり、色々調べていたところ、最近、東北大学の気象学講座の教授であった近藤純正先生から、山本先生が1957年（昭和32年）7月14日の朝日新聞朝刊に「暖かくなる地球—工業の発達で炭酸ガスがふえる」という記事を投稿されていることを教えて頂きました。その記事を読み、やっと山本先生の勧めの理由が理解できるとともに、既に55年も前に我が国において温暖化に関する研究がなされていたことに驚き、その先見性に敬服いたしました。

また、我が国における温室効果気体循環に関する本格的な研究は東北大学で始められましたが、その頃は関連する国際会議に参加する日本人は私達しかおらず、したがって我が国から発信される成果は自ずと限られていました。しかし、現在では国立環境研究所、気象庁、気象研究所、国立極地研究所、産業技術総合



研究所, 海洋研究開発機構, 東京工業大学, 北海道大学, 農業環境技術研究所, 森林総合研究所など多くの機関が温室効果気体について広範な研究を活発に展開し, 国際的に高く評価される成果を上げており, 当時と比べると隔世の感があります。

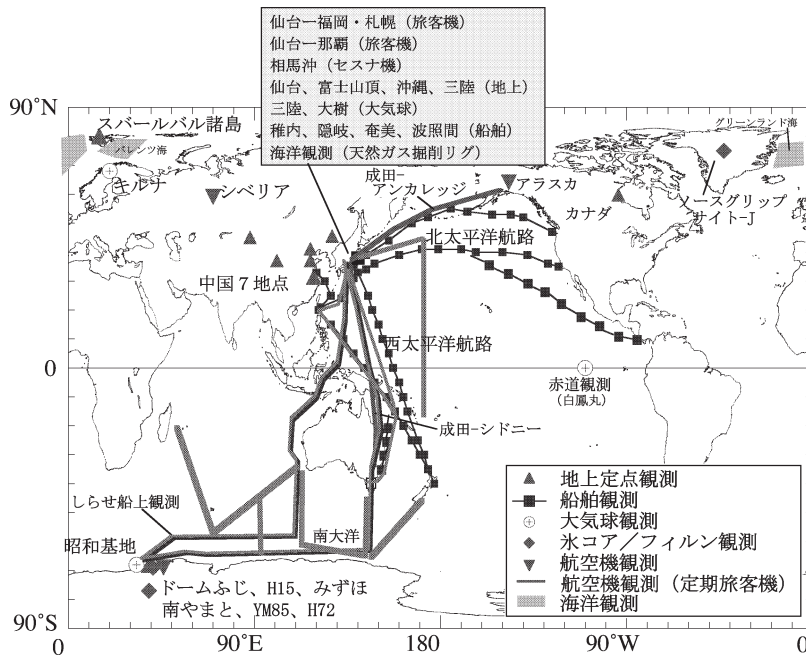
#### 4. これまでの研究の概要

私達はまず大気中の  $\text{CO}_2$  を対象にして研究を開始しましたが, その濃度は低く, 時間的にも空間的にも小さな変動しか示しませんので, そのような変動を精確に検出するためには高度な計測技術が必要です。しかし, 私達が研究を始めようと考えていた頃は, 大気中の  $\text{CO}_2$  濃度を精度よく計測する技術がなかったため, 独自に開発せざるを得ませんでした。当時の大気  $\text{CO}_2$  の測定技術は, 温室や坑道の中での濃度を測定するために開発されたものであり, 市販の非分散型赤外分析計の精度は  $\pm 5 \sim 6$  ppm 程度しか保証されておらず, また標準ガスは  $\text{N}_2$  をベースガスとした  $\text{CO}_2$  混合ガスであり, その濃度 (モル比) の決定精度は  $\pm 6 \sim 7$  ppm でした。大気中の  $\text{CO}_2$  濃度の細かな変動を測定するためには  $0.1$  ppm 程度の精度が必要ですが, 入手できる分析計, 標準ガスともに精度が全く不足しており, また  $\text{N}_2$ - $\text{CO}_2$  混合ガスは,  $\text{CO}_2$  による赤外線吸収を利用した赤外分析計の標準ガスとしては不適当です (Griffith 1982)。そこで, 国内の計測器製造会社やガス製造会社の協力を得ながら試行錯誤を繰り返す, 相対精度  $0.01$  ppm という世界で最高精度の赤外分析計と, 絶対精度  $0.1$  ppm という乾燥自然空気をベースガスとした  $\text{CO}_2$  標準ガスの開発に成功しました (Tanaka *et al.* 1983)。同様の高度計測技術の開発はその後も継続し,  $\text{CH}_4$  や  $\text{N}_2\text{O}$ ,  $\text{SF}_6$ , 一酸化炭素 ( $\text{CO}$ ), 水素 ( $\text{H}_2$ ),  $\text{O}_2$  などの濃度,  $\text{CO}_2$  や  $\text{CH}_4$ ,  $\text{N}_2\text{O}$ ,  $\text{O}_2$ ,  $\text{N}_2$  の同位体比についても確立しました (Aoki *et al.* 1992; Nakazawa *et al.* 1993a, 1995; Sugawara *et al.* 1996; Ishijima *et al.* 2001, 2007; Ishidoya *et al.* 2003; Umezawa *et al.* 2009; Goto *et al.* 2013)。さらに, 過去の温室効果気体の変動を復元するために, 氷床コアから効率よく過去の空気を抽出し, 高精度で濃度と同位体比を測定する技術を完成させ, また最も巨大な炭素貯蔵庫である海洋を対象として, 大気との  $\text{CO}_2$  交換に関わる諸要素を測定する技術の開発も行いました (Nakazawa *et al.* 1993b; Machida *et al.* 1995; Nakaoka *et al.* 2006; Ishijima *et al.* 2007)。このようにして開発された計測技術は,

私達自身の研究のために使われるとともに, 国内外の研究機関でも広く採用されています。

前でも述べましたように, トップダウンアプローチを採用するためには, 濃度や同位体比の変動を地球規模で観測する必要があります。そこで確立した計測技術を駆使して, 国内外での地上観測に加え, 航空機や船舶, 大気球といった機動力に富んだプラットフォームを利用した系統的な広域観測を展開しました。特に航空機についてはチャーター機だけでなく, 国内及び海外路線に就航している定期旅客機も利用し, また船舶については観測船に加え, 国内外航路の大型商船とフェリーを多用しました。大気球による成層圏観測も国内のみならず, 南極の昭和基地やスウェーデンのキルナ, 東部赤道太平洋などで実施しました。私達が研究を開始した頃は, 国際的にみても大気観測は  $\text{CO}_2$  のみが対象となっており, その観測手法は地上基地を世界各地に設置するというものでした。実際, 当時はカリフォルニア大学スクリpps 海洋研究所 (Scripps Institution of Oceanography; SIO) や米国海洋大気庁 (National Oceanic and Atmospheric Administration; NOAA) GMCC (Geophysical Monitoring for Climatic Change: 現在の Global Monitoring Division; GMD), オーストラリア連邦科学産業研究機構 (Commonwealth Scientific and Industrial Research Organisation; CSIRO) などがこのような手法を用いて観測網の拡大を図っていました。一方, 私達は大学の一研究室であり, 同様な手法を採用することは経済的にも人的にも全く不可能でした。そこで, 効率的かつ特徴的な観測を展開して広域にわたる変動の実態を把握するために, 上記のような機動力を利用する方法を考え出しました。民間航空機や商船を利用して観測を行う方法は, 今日では国内外の他の研究機関でも採用されており, 貴重なデータを提供しています。このような大気の観測に加え, 過去の温室効果気体及び関連要素の変動を復元するために, 南極やグリーンランドで掘削されたドームふじコアや H15 コア, みずほコア, 南やまとコア, NGRIP コア, Site-J コアなど多くの氷床コアの分析を行いました。さらに, 大気-海洋間の  $\text{CO}_2$  交換に関わるプロセスを理解し, 交換量を推定するために, 観測船や商船を用いて太平洋, インド洋, 南大洋, グリーンランド海, バレンツ海などで系統的な観測を実施しました。

今日までに行ってきた観測的研究に関する位置情報



第2図 東北大学による温室効果気体観測に関する位置情報。

を第2図に示します。この図から分かりますように、私達がこれまでに実施してきた観測的研究の空間的な広がりには全球に拡大しており、研究を開始する際に目指した「地球規模の観測」はかなりの程度まで達成されたと言えるでしょう。

これらの広域かつ長期にわたる観測的研究から得られたデータは膨大な量に及んでおり、データベースとして整理・保存し、トップダウンアプローチによる解析に供されてきました。実際、次節で紹介するように、データベースを基にして温室効果気体の時間・空間変動の実態を明らかにし、その変動を解釈するとともに、同位体等に関する収支式を解くことによって人為起源気体の全球収支を推定する研究を行いました。また、温室効果気体の変動や収支をより定量的に理解するために、全球炭素循環モデルや全球大気輸送モデルを開発し、それらを用いた観測データの解析も幅広く行いました。

### 5. 研究成果の紹介

前節の概要からも分かりますように、私達は温室効果気体の変動と循環に関して広範多岐にわたる研究を行ってきましたが、ここでは代表的な研究を幾つか選び、観測プラットフォームや研究手法に分けて、その

内容と成果についてももう少し詳しく紹介することになります。なお、ここで使用します図の多くは、論文として発表する際にカラーで作成したものであり、本稿のために白黒に加工したことから不鮮明となった所がありますので、詳細については原論文を参照して頂けると幸いです。

#### 5.1 航空機観測

私達が継続している観測の中で最も長期にわたるものは、航空機による日本上空のCO<sub>2</sub>観測です (Nakazawa *et al.* 1993a)。この観測は、我が国における最も長い温室効果気体観測であり、世界で最も長い温室効果気体の航空機観測と

なっています。人間活動や植物活動からの直接的な影響を避けてベースライン変動を観測し、また鉛直方向の濃度変動を明らかにすることを目的として、1979年1月に観測を開始しました。高度4 km 以下については小型機をチャーターして宮城県・福島県沖の太平洋上で、それより高い高度については、東亜国内航空 (日本エアシステムを経て、現在は日本航空) のジェット旅客機を利用して仙台と福岡あるいは千歳などとの間で観測を行ってきました。この観測により、北半球中緯度の対流圏におけるCO<sub>2</sub>濃度の時間変動や鉛直分布などが初めて明らかになりました。また、航空機によるCO<sub>2</sub>観測は、全日本空輸の協力を得て、1982-1985年に当時の我が国における最長路線であった仙台-那覇間でも実施しました (Tanaka *et al.* 1988)。この観測から、日本列島上空の対流圏上部においても濃度変動の緯度的な違いがあり、当時CSIROがオーストラリア上空で行っていた航空機観測の結果とも明らかに異なることが判明しました。そこで、さらに広域にわたる緯度変化の実態を把握するために、日本航空の協力を得て1984-1985年に成田-アンカレッジ間及び成田-シドニー間で観測を行いました (Nakazawa *et al.* 1991)。この観測によって、対流圏上部での季節変化の緯度分布、成層圏下部での季

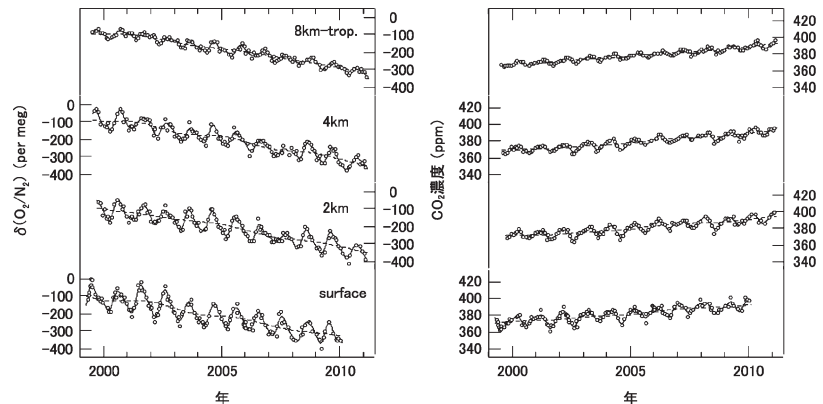
節変化, 対流圏上部での平均濃度の緯度分布などを世界で初めて明らかにすると同時に, 船舶観測や地上観測から得られた結果と比較することによって, その時間・空間変動を大気輸送や炭素循環の観点から解釈しました. なお, 日本航空の定期旅客機を用いた海外に及ぶ航空機観測は, その後, 日航財団・日本航空・

気象研究所による日本-オーストラリア間の長期観測 (Matsueda *et al.* 2002) や, 国立環境研究所・気象研究所・日航財団・日本航空による CONTRAIL (Comprehensive Observation Network for Trace Gases by Airliner) と名付けられた広域観測 (Machida *et al.* 2008) へと発展しました. また, 定期旅客機を用いた大気組成の広域観測は, 現在ではドイツ及びフランスを中心としたヨーロッパの研究機関でも行われるようになっていきます (Volz-Thomas *et al.* 2009).

日本上空における航空機観測は, その後 $\text{CH}_4$ や $\text{N}_2\text{O}$ ,  $\text{SF}_6$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{H}_2$ ,  $\text{O}_2$ の濃度及び $\text{CO}_2$ や $\text{CH}_4$ の同位体比にも対象を拡大しました. 得られた結果の一例として, 1999年から2011年にかけて観測された $\text{CO}_2$ と $\text{O}_2$ の濃度を第3図に示します (Ishidoya *et al.* 2012). この図においては,  $\text{O}_2$ 濃度は不変と考えられる大気中の $\text{N}_2$ に対する比

$$\delta(\text{O}_2/\text{N}_2) = [(\text{O}_2/\text{N}_2)_{\text{sample}} / (\text{O}_2/\text{N}_2)_{\text{standard}} - 1] \times 10^6$$

として表現されており, 添字“sample”と“standard”は, それぞれ試料空気と標準空気を表しています. 単位は per meg であり, 大気中の 1 ppm の $\text{O}_2$ 濃度 (モル比) は 4.8 per meg に相当します. 第3図から, いずれの高度においても,  $\text{O}_2$ は $\text{CO}_2$ とほぼ逆位相の季節変化と年々変動を示すことが分かります. このような逆位相の関係は, 主に陸上生物と海洋生物の活動, 表層海水温変化, 海洋の貯熱量変化, 海洋循環変化などによって生み出されています. また,  $\text{CO}_2$ 濃度は経年的に増加しており,  $\text{O}_2$ 濃度は明らかに減少していることも見られます. 観測された $\text{CO}_2$ 濃度の経年増加には, 化石燃料燃焼による $\text{CO}_2$ 放出と海洋及び陸上生物圏による $\text{CO}_2$ 吸収が関与しており,  $\text{O}_2$



第3図 日本上空における $\text{O}_2$ と $\text{CO}_2$ の濃度変動.

濃度の経年減少には, 化石燃料燃焼による $\text{O}_2$ 消費と陸上生物圏による $\text{O}_2$ 生産が関与しています. したがって, このことを考慮に入れて $\text{CO}_2$ と $\text{O}_2$ に関する収支式を立て, 必要な観測値や統計値を代入すると, 海洋と陸上生物圏による人為起源 $\text{CO}_2$ の正味吸収量を推定することができます (Keeling and Shertz 1992).

2000-2010年における平均的な化石燃料燃焼による $\text{CO}_2$ 放出は8.0 GtC/年 (GtCは炭素換算で $10^9$ トンを意味する), 大気残留は4.5 GtC/年ですので, 第3図の結果を基に実際に収支式を解きますと, 海洋の正味吸収として $2.5 \pm 0.7$  GtC/年, 陸上生物圏の正味吸収として $1.0 \pm 0.8$  GtC/年が得られます. 森林破壊といった土地利用改変による $\text{CO}_2$ 放出に関する最近の推定によると (Friedlingstein *et al.* 2010), 2000年代の平均値は1.1 GtC/年ですので, ここで得られた1.0 GtC/年の正味吸収を考えますと, 2.1 GtC/年の $\text{CO}_2$ がどこかの陸上生物圏で吸収されていたこととなります.

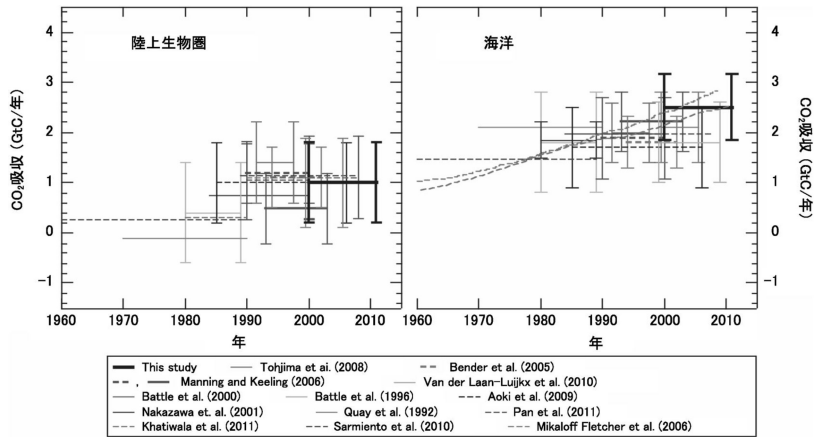
この研究から得られた海洋及び陸上生物圏の正味吸収量を, 他の様々な方法による推定結果と第4図で比較します. それぞれの推定法が固有の困難を抱えていることや, 取得されたデータの空間代表性に問題があるために, 各推定値はかなり大きな不確実性を持っており, また異なった推定法の結果の間に明らかな違いが見られます. しかし, 平均的に見ると, 近年の陸上生物圏の正味吸収はほぼ一定であり, 海洋吸収は経年的に増加していることが分かります. また, 大気残留が1980年代に3.3 GtC/年, 1990年代に3.2 GtC/年であったことを考えますと, 2000年代には大幅に増えた



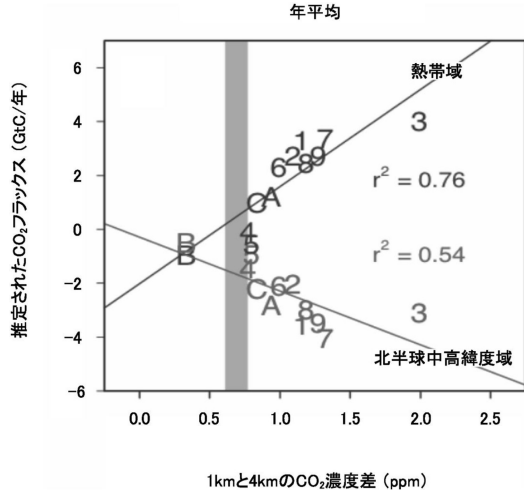
こととなります。このような結果は、中国やインドなどからの化石燃料起源CO<sub>2</sub>の放出が2000年以降に急増したことと関係しており、ここで示したCO<sub>2</sub>収支は、増加した放出CO<sub>2</sub>の多くが大気に残留し、残りの大部分が海洋によって吸収されたことを意味しています。もし土地利用改変によるCO<sub>2</sub>放出が1990年代に1.5 GtC/年、2000年代に1.1 GtC/年であり

(Friedlingstein *et al.* 2010)、近年の陸上生物圏の正味吸収が1.0 GtC/年で一定であるとする、陸上生物圏の全吸収量は1990年代より2000年代が多少小さいこととなります。しかし、土地利用改変からのCO<sub>2</sub>放出の推定には大きな不確定があり、また大気-陸上生物圏のCO<sub>2</sub>交換は、エルニーニョや火山噴火などの影響を強く受けるので、全吸収量の低下が実際に起こっていると現時点で断定することはできません。陸上生物圏によるCO<sub>2</sub>吸収の変化は、今後の大気濃度の推移にとって極めて重要ですので、さらに長期にわたって注視しておく必要があります。

航空機観測の結果を用いた循環の解析例として、さらにCO<sub>2</sub>濃度の鉛直分布を基に検討した陸域炭素収支について紹介します (Stephens *et al.* 2007)。大気輸送モデルによる逆解法解析の国際プロジェクトであるTransCom 3 (The Atmospheric Tracer Transport Model Intercomparison Project Phase 3) は、世界を22領域に分け (海洋を11, 陸域を11), 76地点での地上観測CO<sub>2</sub>データを12の大気輸送モデルを用いて解析し、1992-1996年における全モデルの平均として、赤道域の陸から1.8±1.7 GtC/年の放出、北半球中緯度の陸で2.4±1.1 GtC/年の吸収という収支を推定しました (Gurney *et al.* 2004)。また、赤道域で大規模な森林破壊が行われており、当時の森林統計からは1990年代のCO<sub>2</sub>放出量として1.6 GtC/年が見積もられていました。そのため、2000年代には、森林破壊によって赤道域から大量のCO<sub>2</sub>が放出され、それを上回る量のCO<sub>2</sub>が北半球中緯度の森林によって吸収されているという循環像が広く受け入れられていま



第4図 様々な方法によって推定された陸上生物圏と海洋の正味CO<sub>2</sub>吸収。



第5図 12の大気輸送モデル (1-9とA-C) がそれぞれ推定した北半球中高緯度と熱帯の陸域CO<sub>2</sub>フラックス及び北半球における1 kmと4 kmの平均的CO<sub>2</sub>濃度差。陰は北半球の10地点で観測された1 kmと4 kmのCO<sub>2</sub>濃度差の平均を表す。フラックス、濃度差ともに年平均値で示してある。

した。しかし、日本上空やシベリア上空での私達の観測を含む、北半球の10地点で行われた航空機観測から平均的なCO<sub>2</sub>濃度の鉛直分布を求め、それを再現するモデルがあるか検討したところ、第5図に示すように、3つのモデル (4, 5, C) が年平均分布を再現することが判明しました。これら3つのモデルが推定するフラックスを平均すると、赤道域からの放出が

0.1±0.8 GtC/年、北半球中緯度での吸収が1.5±0.6 GtC/年となり、全モデルの平均値とは明らかに異なります。赤道域からの正味 CO<sub>2</sub>放出が少ないということが事実であるとする、過去に伐採が行われた地域で再生している森林あるいは手付かずの森林が、森林伐採による放出とほぼ同量の CO<sub>2</sub>を吸収していることになり、従来の陸域炭素循環の理解に大幅な見直しを迫るものと、多くの研究者が注目しています。しかし、季節別の CO<sub>2</sub>濃度の鉛直分布については、いずれのモデルも再現性が悪く、モデルの輸送場の高度化や観測データの充実などの観点からも同時に検討が必要です。

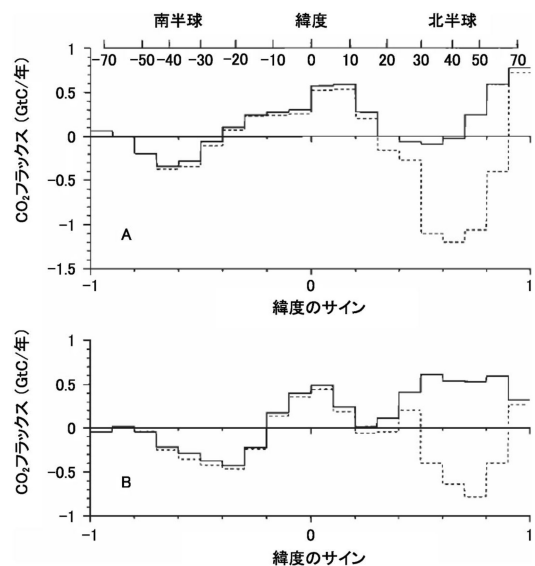
## 5.2 船舶観測

外国航路に就航している商船の多くは同じルートを繰り返し往復するので、温室効果気体の時間・空間変動を広域にわたって把握する上で好都合な観測プラットフォームです。このような商船の特徴を活かすべく、私達は1982年に横浜-メルボルン、東京-シアトル、東京-ニューヨーク間に就航していた日本郵船のコンテナ船を用いて太平洋上における広域観測を開始しました。当初は CO<sub>2</sub>を測定対象としていましたが、その後 CH<sub>4</sub>、N<sub>2</sub>O、SF<sub>6</sub>、CO 等の濃度や各種の同位体に拡大し、今日まで観測を継続してきました (Tanaka *et al.* 1987; Nakazawa *et al.* 1992, 1997; Ishijima *et al.* 2009; Yashiro *et al.* 2009)。また、オーストラリア航路では、世界で最も早い時期に商船を利用した大気-海洋間の CO<sub>2</sub>分圧差の系統的観測を実施しました。なお、商船を利用した大気及び海洋の広域観測は、現在では国立環境研究所や NOAA/GMD, イギリスのイーストアングリア大学などによっても行われています。

太平洋での船舶観測を開始して数年が経ち、CO<sub>2</sub>濃度の緯度分布が得られるようになった頃、地上観測網を拡大しつつあった NOAA/GMCC も緯度分布を求めることができるようになっていました。そこで、NOAA/GMCC の研究者と共同して南北-高度 2 次元大気輸送モデルを開発し、それを用いて両機関の CO<sub>2</sub>濃度データを逆解法解析し、CO<sub>2</sub>フラックスの緯度分布を推定することにしました (Tans *et al.* 1989)。得られた年平均のフラックス分布を第 6 図に示します。解析に使用したデータは、NOAA については1981-1985年に、東北大学については1982-1985年に取得されたものですので、推定されたフラックスは1980年代前半のものとなります。この図には、モデル

による逆解法解析の結果と、それから化石燃料燃焼の寄与を差し引いた結果が示されています。当時の化石燃料消費は、現在と同様に、北半球中高緯度でほとんど行われていましたので、両者の差はこの緯度帯で大きくなっています。化石燃料燃焼の寄与を除くと、CO<sub>2</sub>が赤道域から放出され、南北両半球中高緯度で吸収されていることが分かります。赤道域での放出は深層水の湧昇に伴う海洋起源 CO<sub>2</sub>によるものであり、南半球中高緯度での吸収は、この緯度帯には陸上植物がほとんどないので、海洋の働きによるものです。北半球中高緯度の吸収には海洋と陸上生物圏あるいはいずれかが関与していると考えられます。

この研究では 2 次元大気輸送モデルが用いられたため、経度方向の濃度の不均一が問題となり、また濃度のみを解析しているために、大気-海洋間と大気-陸上生物圏間のフラックスの分離ができませんでしたが、世界的に最も早い段階での逆解法解析によるフラックス推定であったので、この論文は今日でも広く引用されています。なお、CO<sub>2</sub>濃度に加え、1984年には CO<sub>2</sub>の炭素同位体比 ( $\delta^{13}\text{C}$ ) の測定も開始し、2 次元大気輸送モデルによる CO<sub>2</sub>濃度と  $\delta^{13}\text{C}$  の同時逆解法解析を行うことによって、北半球中高緯度の吸収には陸



第 6 図 NOAA/GMCC (A) と東北大学 (B) の CO<sub>2</sub>濃度観測データを 2 次元大気輸送モデルで解析することによって求めた CO<sub>2</sub>フラックスの緯度分布 (実線)。破線は化石燃料燃焼の寄与を除いた結果を示す。



上生物圏が大きな働きをしていることを明らかにしました (Nakazawa *et al.* 1997; Morimoto *et al.* 2000)。また、1985-2006年に得られたCO<sub>2</sub>濃度と $\delta^{13}\text{C}$ のデータを用いてCO<sub>2</sub>と<sup>13</sup>CO<sub>2</sub>の収支式を解くと、海洋と陸上生物圏による平均的な正味吸収量は、それぞれ2.0±0.7 GtC/年と1.0±0.7 GtC/年となり、第4図に示した結果と概ね整合的です。

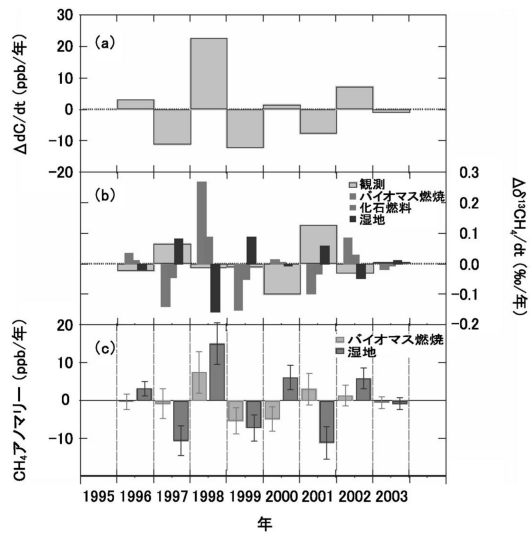
### 5.3 地上観測

今日まで最も長期にわたって継続している地上観測は、国立極地研究所と共同して1984年に開始した南極昭和基地での観測です。現在ではCO<sub>2</sub>やCH<sub>4</sub>、N<sub>2</sub>O、CO、H<sub>2</sub>、O<sub>2</sub>の濃度、CO<sub>2</sub>やCH<sub>4</sub>の同位体比の測定を行っています。昭和基地に次いで長期にわたるものは、1991年から国立極地研究所と行っている北極スバル諸島ニーオルスン基地での観測です。ここでは、ニーオルスン基地で観測されたCH<sub>4</sub>濃度の年々変動を考察した研究を紹介することにします (Morimoto *et al.* 2006)。大気中のCH<sub>4</sub>濃度が、季節変化や経年増加に加え、年々変動を示すことは以前より知られており、その原因について幾つかの側面から議論が行われてきました。私達の研究においては、CH<sub>4</sub>の $\delta^{13}\text{C}$ を長期にわたって濃度と同時に測定し、その結果を利用して年々変動を定量的に解釈しており、新しい視点からの試みです。

ニーオルスン基地で観測された1996-2003年の各年のCH<sub>4</sub>濃度と $\delta^{13}\text{C}$ の年増加率を第7図に示します。この図から分かりますように、両者の変動の大きさは必ずしも相関していません。例えば1998年を見ますと、濃度は大幅に増加していますが、 $\delta^{13}\text{C}$ の変化は小さく、2000年については逆に濃度の変化は小さいものの、 $\delta^{13}\text{C}$ が大きく減少しています。このような関係がなぜ生ずるのか検討するために、CH<sub>4</sub>の消滅は年によらず一定と仮定して、まず濃度変動の全てがバイオマス燃焼 ( $\delta^{13}\text{C} = -25\text{‰}$ )、化石燃料燃焼 ( $\delta^{13}\text{C} = -40\text{‰}$ )、湿地 ( $\delta^{13}\text{C} = -60\text{‰}$ ) のいずれかによって生じたとした場合に期待される $\delta^{13}\text{C}$ の変化を計算しました。結果は第7図bの通りです。観測値と比較して直ぐに分かるように、 $\delta^{13}\text{C}$ の年々変動は単独の放出源の寄与だけでは説明できないことが明らかです。そこで、観測期間が比較的小さいので、さらに化石燃料燃焼の年々変動を無視し、観測された $\delta^{13}\text{C}$ の年増加率に一致するように、湿地とバイオマス燃焼からのCH<sub>4</sub>放出を求めました。第7図cに示した結果から分かりますように、湿地とバイオマス燃焼に起因す

る変動の大きさはおよそ2対1であり、大気CH<sub>4</sub>の年々変動には湿地がより大きく寄与していることとなります。特に、1998年に観測された大きな濃度増加には湿地とバイオマス燃焼が寄与しており (したがって $\delta^{13}\text{C}$ の変化はキャンセルされる)、2001年に見られた大きな $\delta^{13}\text{C}$ の増加は、湿地からのCH<sub>4</sub>放出が大幅に減ったために生じたことが分かります。また、ここで得られた結果を、北半球高緯度の湿地帯での5-10月の気温と降水量の変動及び森林火災焼失面積と比較したところ、CH<sub>4</sub>濃度の増加率は降水量と良い相関があるが、気温との相関は弱い、1998年に発生した大規模な森林火災と強く関係している、といったことも明らかとなりました。

この研究が行われる前には、大気CH<sub>4</sub>の年々変動は単独の放出源の寄与によって解釈される場合が多く、その結果には大きな違いがありました。しかし、上で述べた結果から明らかのように、実際には複数の放出源が複雑に絡み合って濃度変動を生み出してお



第7図 北極ニーオルスン基地で観測されたCH<sub>4</sub>濃度 (a) と $\delta^{13}\text{C}$  (b) の年増加率と、CH<sub>4</sub>消滅を一定と仮定し、濃度変動の全てがバイオマス燃焼、化石燃料燃焼、湿地のいずれかによって生じたとした場合に期待される $\delta^{13}\text{C}$ の年増加率 (3本の細い縦棒。バイオマス燃焼は左、化石燃料燃焼は中央) (b)、化石燃料燃焼の年々変動を無視し、観測された $\delta^{13}\text{C}$ の年増加率に一致するように決めた湿地とバイオマス燃焼からのCH<sub>4</sub>放出 (c)。

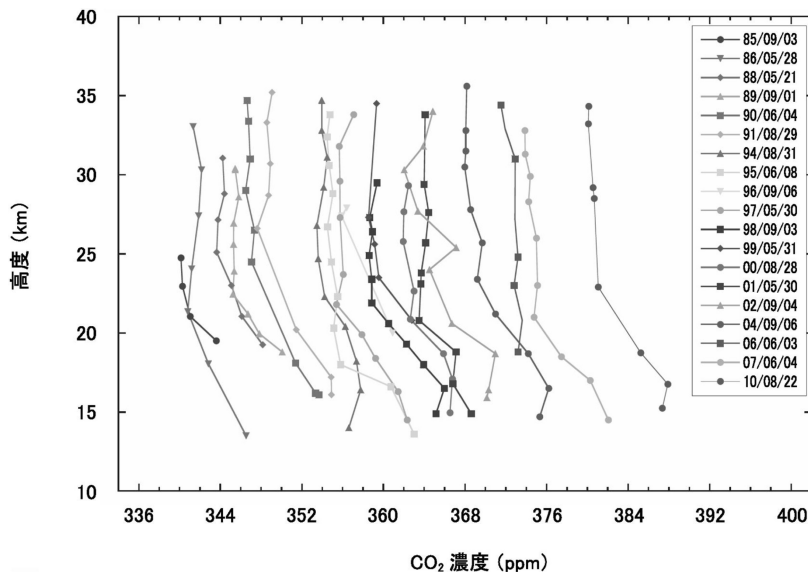
り、その理解にとって同位体データの利用が有効であることを示しています。なお、CH<sub>4</sub>の主たる消滅源であるOHの挙動が良く理解されていないため、上の解析ではCH<sub>4</sub>の消滅は時間によらず一定であると仮定しましたが、OH濃度が年々変動している可能性がありますので、この観点からの検討もさらに必要です。

#### 5.4 大気球観測

成層圏は対流圏起源の気体が輸送されて行く先であり、N<sub>2</sub>OやCH<sub>4</sub>の消滅の場でもあるので、そこでの温室効果気体の挙動を把握することは、単に時間・空間変動の実態を理解するためだけでなく、大気輸送化学モデルの高度化やそれを用いた循環の解明にとっても不可欠です。私達は、宇宙科学研究所の協力を得て、1985年にクライオジェニックサンプラーを用いた成層圏大気の採集を日本上空で開始し(Honda *et al.* 1996)、今日まで継続しています。同様な観測は、国立極地研究所や国立環境研究所、東京大学大気海洋研究所などと共同して南極やスカンジナビア半島、赤道太平洋においても実施しました。得られた大気試料は、CO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>、N<sub>2</sub>O、SF<sub>6</sub>、O<sub>2</sub>、H<sub>2</sub>、COの濃度やCO<sub>2</sub>、N<sub>2</sub>O、CH<sub>4</sub>、O<sub>2</sub>、N<sub>2</sub>、Arの同位体比などについて分析が行われました(Gamo *et al.* 1989; Nakazawa *et al.* 1995, 2002; Sugawara *et al.* 1997; Toyoda *et al.* 2001; Aoki *et al.* 2003; Rohs *et al.*

2006; Ishidoya *et al.* 2006, 2008)。

第8図に、日本上空の成層圏で観測されたCO<sub>2</sub>濃度の鉛直分布を示します。CO<sub>2</sub>濃度は、対流圏界面から上空に向かって低下し、20-25 km付近ではほぼ一定の値をとります。このような鉛直分布は、基本的には赤道域で成層圏に侵入した対流圏大気が極域に向かって輸送される際、高高度に比べて低高度でより早く移動するために生じています。しかし、より詳しく高度分布を検討してみると、成層圏中層での鉛直勾配が年によって多少異なることも分かり、Brewer-Dobson循環の年々変動によるものと考えられます。また、CO<sub>2</sub>濃度がほぼ一定の値となる20-25 km以上のデータを平均して時系列を作成し、日本上空の対流圏上部やハワイ・マウナロアでの観測結果と比べてみると、濃度増加率が対流圏より成層圏でわずかに小さいことに気づき、成層圏大気の年齢が徐々に古くなっている可能性を見いだしました。このことを論文として発表すべく準備していたところ、同じ現象は主にSF<sub>6</sub>を基にしてドイツのグループによっても発見され、両者の結果をまとめて出版することにしました(Engel *et al.* 2009)。赤道域対流圏を基準としてCO<sub>2</sub>とSF<sub>6</sub>から決定した北半球成層圏中部での大気年齢を第9図に示します。この図から、成層圏中部においては対流圏より4-6年遅れて濃度が経年増加しており、対流圏と成層圏の濃度差が年とともに大きくなっていることが見られます。一方、大気大循環モデルは温暖化に伴いBrewer-Dobson循環が強まり、成層圏大気の年齢が若くなることを予測しており、観測から得られた結果とは明らかに異なっています。なお、論文の中では、各濃度データの誤差を考慮して、成層圏大気の年齢は若くなつてはいないと表現しましたが、日本上空に関してその後のCO<sub>2</sub>データを加えると、成層圏大気の年齢が延びていることは統計的に有意であり、成層圏の輸送場が変化しつつあると考えられます。温暖化に伴うBrewer-



第8図 日本上空の成層圏で観測されたCO<sub>2</sub>濃度の鉛直分布。鉛直分布の観測年は、全体としては図の左から右に向かって新しくなっている。

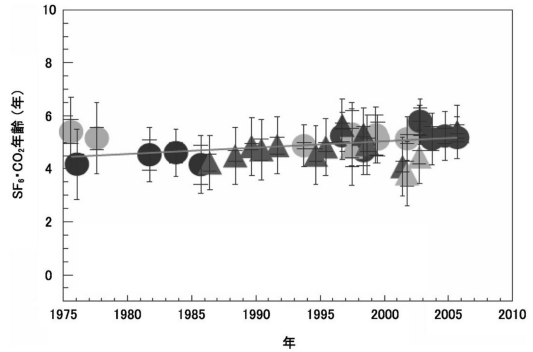
Dobson 循環の変化は、大気力学のみならず温室効果気体の循環にとっても重要ですので、今後さらに観測の継続・強化やモデルの改良を図り、理解を深める必要があります。

以上で述べた結果の他にも、CO<sub>2</sub>は成層圏においてオゾン (O<sub>3</sub>) との酸素原子の交換によって同位体的に重くなり、その効果は対流圏に起源を持つ CO<sub>2</sub> が到達するまでに時間を要する高高度で顕著になる (酸素同位体比 ( $\delta^{18}\text{O}$ ) が高くなる) ことや、一見するとランダムな時系列を示す成層圏の CH<sub>4</sub> 濃度も、大気寿命が長い N<sub>2</sub>O によって高度をスケールリングすると、対流圏と同様な経年増加を示すこと、化石燃料消費による O<sub>2</sub> の減少が成層圏でも検出されること、これまで中間圏より高い高度で起こると信じられていた大気成分の重力分離が成層圏でも観測されること、といった新たな事実も私達の研究によって初めて明らかにされました。

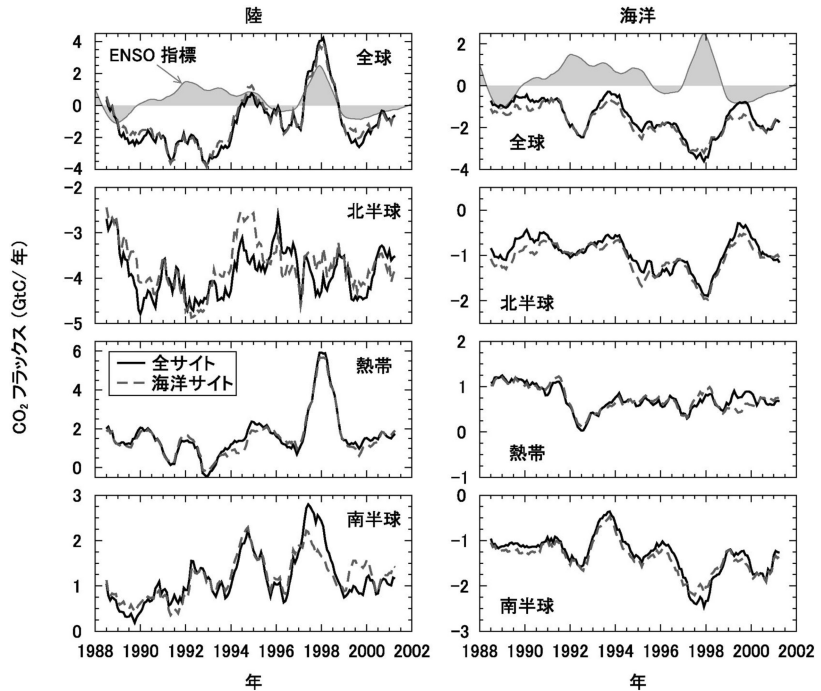
5.5 モデルによる循環解析

大気中の CO<sub>2</sub> 濃度を広域にわたって測定し、全球 3 次元大気輸送モデルで解析することは、既に1980年代末に C. D. Keeling 等によって前進計算法を用いて行われていましたが、逆解法による CO<sub>2</sub> フラックスの推定は2000年代になって本格的に行われるようになりました。特に TransCom 3 と名付けられた逆解法の国際プロジェクトは広く知られています (Gurney *et al.* 2002)。このプロジェクトでは、全球を22の領域に分割し、多数の地点で観測された濃度変動を最も良く再現する各領域の CO<sub>2</sub> フラックスを求めています。私達はさらに高解像度の逆解法を開発してフラックス推定を行いました (Patra *et al.* 2005a, b)。私達の研究では、全球を64領域に分割し (陸域を42, 海洋を22)、まず各領域に TransCom 3 で採用されたものと同じデータセット

から CO<sub>2</sub> フラックスを先験的に与え、次に1988年1月-2001年12月に世界87地点で観測された CO<sub>2</sub> 濃度データを用いて拘束することによって最適なフラックスを求めました。得られた CO<sub>2</sub> フラックスを全球及び半球規模にまとめ、第10図に示します。この図から、フラックスの年々変動は、エルニーニョの発生や1991年6月のフィリピン・ピナツボ火山噴火と密接に



第9図 SF<sub>6</sub>及びCO<sub>2</sub>の濃度から求めた北半球成層圏中部の大気の年齢。丸はSF<sub>6</sub>年齢、三角はCO<sub>2</sub>年齢を表す。



第10図 3次元大気輸送モデルを用いた全球64領域分割の逆解法によって推定された全球及び半球規模の CO<sub>2</sub> フラックス。ENSO 指標も合わせて示してある。

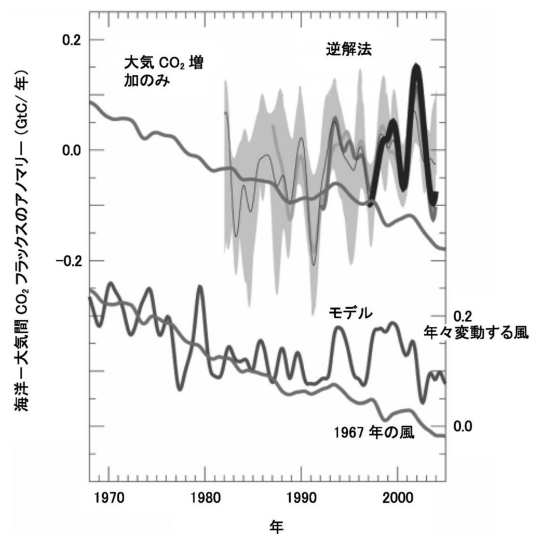


関係していることが分かります。このような関係は、エルニーニョや火山噴火によって生じた気候変動に炭素循環が応答したために見られたものです。さらに結果を詳細に見ますと、ピナツボ火山が噴火した際、北半球と赤道域の陸域がCO<sub>2</sub>を吸収しており、エルニーニョが発生すると、熱帯域と南半球の陸域がCO<sub>2</sub>を放出し、熱帯域以外の海洋によるCO<sub>2</sub>吸収は一時的に強まるということが分かります。また、全ての観測点での濃度データを用いた場合と、海洋に位置する観測点からのデータを用いた場合とでは、特に北半球の陸域で結果が多少異なることを示しています。この原因は、大気輸送と陸上生物圏フラックスの季節変化に関係したRectifier（整流）効果（Denning *et al.* 1995）にあり、大気輸送モデルを用いてフラックスを解析する際には、この効果をモデルに正しく取り入れることが重要です。さらに、この研究の結果は、1990年代の平均的な海洋と陸上生物圏の正味CO<sub>2</sub>吸収が1.9±0.5 GtC/年と1.2±0.7 GtC/年であることを示しており、IPCC（2007）がそれぞれの正味吸収として評価した2.2 GtC/年と1.0 GtC/年に近い値となっています。なお、最近では、逆解法解析は多くの研究者によって活発に行われていますが、得られた結果の全てが良い一致を示している訳ではなく、また他の方法による結果と大きく異なるものもありますので、今後さらにモデルや解析法の改良・改善及び観測データの充実が望まれます。

TransCom 3 による逆解法の結果が発表された際、特に南大洋におけるCO<sub>2</sub>吸収が、CO<sub>2</sub>分圧差測定を基に推定された値（Takahashi *et al.* 2002）と大きく異なっていたため、国際的な関心を集めました。そこで、この違いを解明するために、南大洋に特化した解析を国際共同研究として行うことにしました（Le Quééré *et al.* 2007）。この研究では、昭和基地を含む南極周辺11地点、その他40地点でのCO<sub>2</sub>濃度データを用いた逆解法を行い、さらに海洋循環生物化学モデルによる海洋吸収の検討も行いました。得られた結果を第11図にまとめて示します。逆解法の結果は、南大洋のCO<sub>2</sub>吸収が1981-2004年に10年間当たり0.03 GtC/年ほど弱まったことを示しています。一方、大気中のCO<sub>2</sub>増加からは、同じ期間に10年間当たり0.05 GtC/年ほど吸収が強まることが期待されます。すなわち、南大洋のCO<sub>2</sub>吸収能力は、1981-2004年の期間に10年当り0.08 GtC/年の割合で低下したことを意味しています。

このような南大洋のCO<sub>2</sub>吸収の弱화가どのような理由で引き起こされたのか検討するために、海洋循環生物化学モデルを用いて南大洋の大気-海洋間のCO<sub>2</sub>フラックスの計算を行いました。1967年の風を繰り返してモデルに与えて計算したCO<sub>2</sub>フラックスは、海洋による吸収が年毎に強まることを示しており、上で述べた大気中のCO<sub>2</sub>増加から期待される海洋吸収の傾向と一致しています。一方、風を年々変動させると、大気CO<sub>2</sub>濃度の逆解法から得られたフラックスの時間変動と同じ傾向を示します。このことから、近年の南大洋によるCO<sub>2</sub>吸収の弱体化は、オゾン層破壊や温暖化に伴って南極周辺の風（南半球環状モード：SAM）が強まり、それによって南大洋の鉛直循環が強められ、溶存無機炭素濃度が高い深層の海水が湧昇しているためと考えられます。

この研究で示唆されたメカニズムに異を唱える研究もあり、さらに検討を進める必要がありますが、最近



第11図 南大洋におけるCO<sub>2</sub>フラックスのアノマリー。「逆解法」は3次元大気輸送モデルによる大気CO<sub>2</sub>濃度の解析結果（上側の4本の線と陰影）、「大気CO<sub>2</sub>増加のみ」は大気中のCO<sub>2</sub>濃度増加から期待される結果（上側の薄灰線）、モデルの「1967年の風」は海洋循環生物化学モデルに1967年の風データを毎年繰り返して与えることによって得られた結果（下側の薄灰線）、「年々変動する風」はモデルに入力する風を実際に合わせて年々変動させることによって得られた結果（下側の濃灰線）。

の多くの研究は、南大洋のCO<sub>2</sub>吸収が以前考えられていたよりもずっと小さいことを示しています (Patra *et al.* 2005b ; Metzl *et al.* 2006 ; Takahashi *et al.* 2009)。なお、かつてTakahashi *et al.* (2002) 等で、南大洋に関して大きなCO<sub>2</sub>吸収が主張されていた主な理由は、海洋のCO<sub>2</sub>分圧データが夏季に限定されていたことや、その経年増加補正に問題があったためと考えられます (Takahashi *et al.* 2009)。

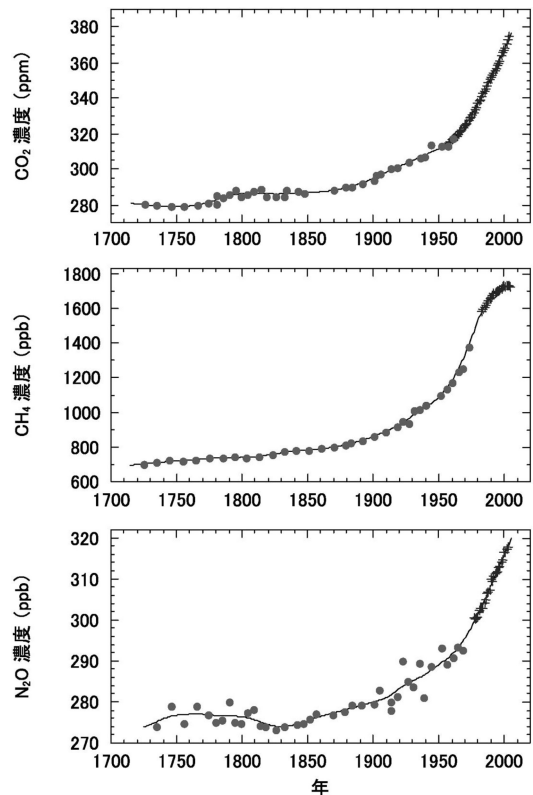
5.6 氷床コア分析

南極やグリーンランドの氷床の鉛直断面を見ますと、上部にフィルンと呼ばれる雪でできた通気層があり、その下に氷の層が存在することに気づきます。氷床表面に雪が降り積もると、その重みが氷床に加わり、またフィルンの中で水分子の昇華・凝結が起こるため、フィルン底部では雪同士が接合し氷に変化しますが、その際に周辺にある空気を気泡として氷の中に取り込みます。氷は降雪による重みで徐々に沈降して行きますので、深度が増すにつれて氷に含まれる空気は古い時代のものになります。したがって、下層に向かってコアを掘削し、それに含まれる空気を順々に取り出して分析することにより、過去の大気成分の時間変動を知ることができます。なお、フィルンの厚さは積雪涵養率や気温などに関係しており、場所によって異なりますが、概ね数十mから百数十mであり、その大部分の層では大気成分は分子拡散によって移動しますので、フィルンの上部より底部の方が少し古い時代の成分となります。したがって、フィルンの空気も過去の大気成分の復元に利用することができ、実際に私達は南極やグリーンランドでフィルン空気を採取し、N<sub>2</sub>OやCH<sub>4</sub>の濃度、それらの窒素同位体比 ( $\delta^{15}\text{N}$ )、 $\delta^{18}\text{O}$ 、 $\delta^{13}\text{C}$ 、水素同位体比 ( $\delta\text{D}$ ) の時系列を復元しました (例えば Ishijima *et al.* 2007)。また、これらの時系列を解析して、土壌起源のN<sub>2</sub>Oが近年の濃度増加にとって重要であったことを明らかにするとともに、CH<sub>4</sub>濃度増加への微生物起源、化石燃料起源、バイオマス燃焼起源のCH<sub>4</sub>の寄与を分離して評価することも行いました。

氷床コア分析の結果の一例として、南極 H15地点で掘削されたコアを分析することによって復元した過去300年に及ぶCO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>、N<sub>2</sub>Oの濃度変動を第12図に示します。なお、この図には南極点での大気の直接観測から得られた年平均濃度も同時に示してあります。コア分析と大気観測の結果は滑らかにつながっており、氷床コア分析が過去の濃度を復元する上で信頼

できる方法であることを示しています。さらに、工業化以前のCO<sub>2</sub>濃度は280 ppm、CH<sub>4</sub>濃度は700 ppb、N<sub>2</sub>O濃度は275 ppbであり、この300年間でCO<sub>2</sub>は100 ppm、CH<sub>4</sub>は1000 ppb、N<sub>2</sub>Oは50 ppbも増加し、その傾向は20世紀、特に中葉以降に著しいことも分かります。ちなみに、他のコアの分析結果を見てみますと、人間活動によるCH<sub>4</sub>とN<sub>2</sub>Oの増加はもっと古くから始まっており、また工業化以前でも北極域のCH<sub>4</sub>濃度は南極域より50 ppbほど高かったことを示しています (Nakazawa *et al.* 1993c)。

復元された濃度変動の解析例として、Box-diffusion 炭素循環モデル (Oeschger *et al.* 1975) を用いたCO<sub>2</sub>濃度の deconvolution (逆畳み込み) 解析から得られた海洋と陸上生物圏のフラックスを、大気残留 (第12図に示した大気濃度の経年増加から導出) と化石燃料起源CO<sub>2</sub> (統計データ) とともに第13図に示

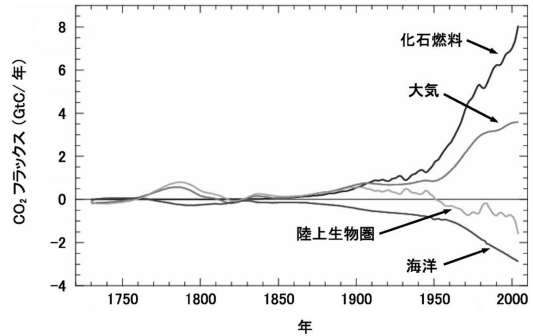


第12図 南極 H15氷床コアを分析することによって得られたCO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>、N<sub>2</sub>Oの濃度 (●)。南極点における大気の直接観測から得られた年平均濃度も+で示してある。

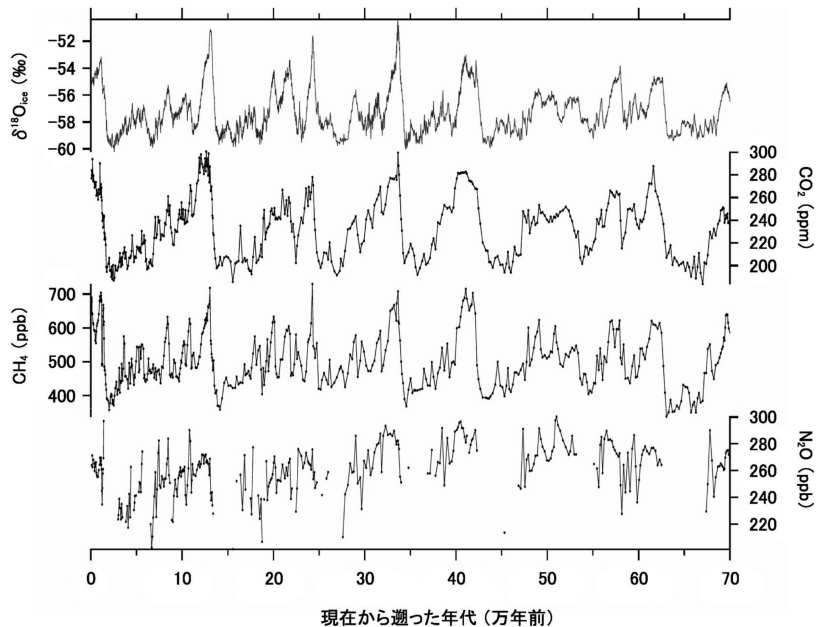
します。この結果から、化石燃料起源 CO<sub>2</sub> の放出は前世紀中葉以降に強まっている、海洋は吸収源であり、その吸収は特に前世紀中葉以降に強まっている、陸上生物圏は前世紀中葉までは放出源、それ以降は吸収源として振る舞っている、大気残留は前世紀中葉以降に強まったが、1980年代-1990年代は鈍化傾向にある、18世紀後半の濃度の急増は自然的要因による陸上植物圏からの放出のためである、といったことを読み取ることができます。なお、1980年代-1990年代に見られる大気残留の鈍化は、大気 CO<sub>2</sub> の増加に伴う海洋や陸上生物圏による吸収の強まりのためと考えられ、2000年代には中国やインドなどにおける化石燃料消費の急速な増大によって大気残留は大幅な増加に転じています。

積雪涵養率が低く、低温である大陸内部において深層までコアを掘削し、それを分析すると、数十万年に及ぶ大気成分の変動が復元できます。しかし、深層氷床コアから大気成分を復元する際に遭遇する大きな困難の一つは、氷の年代を正確に決定することです。通常は堆積モデルを用いたり、年層などを数えたりして推定しますが、決定精度や適応性に限界があり、大きな問題となっていました。私達は、南極ドームふじ基地で掘削された深層氷床コアに含まれる空気中の O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> 比を測定することによって年代を高精度で決定するという、従来とは全く異なった新しい方法を開発しました (Kawamura *et al.* 2007)。すなわち、コア空気から復元された O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> 比の変動が掘削現場での夏季日射量と逆相関であることを見だし、この関係を利用して誤差±2000年以内という高精度の年代決定を行いました。なお、O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> 比と日射量の逆相関の理由は未だ十分に解明されてはいませんが、夏季に強い日射を受けた層はフィルン底部で通気度が高く、気泡形成時に比較的小さい O<sub>2</sub> 分子が選択的にフィルン側に残されるためではないかと考えられ

ます。第14図は、全長3035 m のドームふじ深層氷床コアを分析し、新たな年代決定法に従って表示した、過去70万年間の CO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>、N<sub>2</sub>O 濃度の変動です。この図には、気温の指標となる氷の δ<sup>18</sup>O も示してあり、高い値をとる期間が間氷期、低い値をとる期間が氷期に相当します。また、N<sub>2</sub>O 濃度は氷期最盛期に異常に高い値を示しましたので、この図では除去して



第13図 H15氷床コア及び大気観測から求めた CO<sub>2</sub>濃度変動を全球炭素循環モデルで解析して得られた海洋と陸上生物圏の正味 CO<sub>2</sub>フラックス。「大気」は大気の濃度変動から、「化石燃料」は統計から得られた結果である。



第14図 南極ドームふじ深層氷床コアから復元された過去70万年間の CO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>、N<sub>2</sub>O 濃度及び氷の δ<sup>18</sup>O の変動。



あります。このような高濃度は、他の深層コアの分析からも見いだされており、陸地から輸送されてきたバクテリアによって氷床内で新たに  $N_2O$  が生成されたためと考えられます。そこで第14図では、非海塩性  $Ca^{2+}$  を陸起源のバクテリアの指標として用い、高濃度の  $N_2O$  データを除去しました。

第14図の結果を見ますと、いずれの気体の濃度も間氷期に高く、氷期に低く、間氷期から氷期最盛期に向かってはゆっくりと、氷期最盛期から間氷期には急激に変化しており、氷期の間にも亜氷期-亜間氷期サイクルに対応して細かく変動していることが分かります。また、氷期最盛期の濃度は氷期によらず概ね一致していますが、間氷期の濃度はその時々によってかなり異なっています。全体として見ますと、濃度変動は気温と良い相関があり、このような関係は、氷期-間氷期あるいは亜氷期-亜間氷期という大きな気候変動によって温室効果気体の循環が変化するために生じたものです。さらに細かく結果を検討しますと、 $CO_2$  濃度は気温より明らかに数百年から千数百年ほど遅れて変動していることが分かります。このような遅れは、全球規模の炭素循環には様々な時間スケールを持つ多くのプロセスが複雑に絡み合っているため、 $CH_4$  循環などと比べて、気候変動に十分応答するまでにより長い時間を要するためです。

第14図から明らかのように、いずれの気体も氷期に大きな濃度低下を示していますが、その具体的な原因については未だ十分に解明されておらず、多くの研究が行われているところです。 $CO_2$  については、海洋による吸収が主因であることに間違いありませんが、そのメカニズムとしては、海水温低下、海洋生物活動の活発化、アルカリ度の変化、南極海の海水面積の拡大などといった多くの候補が挙げられています。しかし、提案されているそれぞれのメカニズムには、量的な説明が不十分である、あるいは他の事実と整合しないといった問題があり、幾つかのメカニズムが複合して濃度低下を招いたと考えるのが自然でしょう。 $CH_4$  については、氷期は気温が低く、乾燥していたこと、北半球の中高緯度が雪氷に覆われていたことを考えますと、湿地面積の減少、非嫌気的環境の拡大、微生物活動の不活発化などによる放出源強度の低下が有力な原因として挙げられます。 $N_2O$  の低濃度は、主に温度低下に伴う土壌及び海洋での微生物活動の不活発化による放出量の減少に起因していると考えられます。現在、私達は温室効果気体と気候との係わりについて

理解を深めるために、高時間分解能の濃度変動の復元を行っており、また氷期や亜氷期の濃度低下の原因をより具体的に解明するために、各種の同位体比の復元も進めているところです。

## 6. おわりに

温室効果気体の研究を始めて35年もの時間が経過しました。研究を始めた頃は、国際的に見ても対象となっていた気体は  $CO_2$  に限られており、その大気濃度の系統的観測も少なく、循環モデルも単純なものでした。また、国内においては、地球温暖化を意識した温室効果気体の研究は全く行われていませんでした。しかし、1990年代になって温暖化問題が大きな国際的関心事となり、多くの研究者が温室効果気体の循環に興味を持つようになりました。それに伴って、測定対象成分の増加、計測技術の高精度化、観測網の拡大・充実、観測手段の多様化、データの蓄積、循環モデルの高度化などが図られ、循環の知識は大幅に向上しました。しかし、上でも述べましたが、循環の定量的な理解は未だ不十分であり、温暖化問題に対応するために必要とされる確かな知見を与えているとは言えません。今後さらに観測データを充実させ、モデルや解析手法の開発・改良を行い、両者を融合させることによって循環のプロセスとメカニズムの理解を進め、定量的に信頼できる循環像を確立する必要があります。また、温室効果気体の循環は、気候変動に対して敏感に反応しますので、温暖化が進行すると循環が変化し、大気濃度に大きな影響を与えます。しかし、気候と循環の相互作用について十分な理解が得られている訳ではなく、この点も温暖化への対処における大きな困難となっており、今後この課題の解決に向けた研究をさらに推進する必要があります。

我が国における温室効果気体研究のコミュニティは決して大きくありませんが、最近では特徴のある観測やモデル解析が活発に行われるようになっており、その成果は国際的にも高く評価されています。かつては地球規模の現象は日本人の手に合わないと言われる方も多くいましたが、今日では意識も変わり、ごく自然に取り組むことができる環境になっています。このように変化した環境の下、今後さらに優秀な若手研究者を育成し、国際的コミュニティをリードする高度な研究を展開し、我が国が温暖化問題への対応に一層大きく貢献することを願っております。

## 謝 辞

温室効果気体の研究を始め、これまで継続することができたことは、恩師である故山本義一先生と田中正之先生、青木周司東北大学教授をはじめとする数多くの優秀な元学生諸氏、地球環境フロンティア研究センター（現 海洋研究開発機構）の同僚、ならびに国立極地研究所、国立環境研究所、宇宙科学研究所、東京大学、北海道大学、東京工業大学に所属する共同研究者の皆様のお陰です。また、NOAA/GMDやSIO、CSIRO、マックスプランク研究所、カナダ環境庁、イーストアングリア大学、米国大気研究センターなど、多くの外国の研究機関の研究者とも共同して研究を行いました。特に温室効果気体研究を始めるきっかけとなった論文の著者であり、後に研究室に呼んで頂き共同研究を行う機会を与えて下さった故 Charles D. Keeling 先生に心よりお礼申し上げます。さらに、計測技術の開発や広域にわたる観測の実施では、日本酸素（現 太陽日酸）、堀場製作所、島津製作所、フィニガンマット・インスツルメンツ（現 サーモフィッシャー）日本支社、日本航空（旧 東亜国内航空・日本エアシステム）、全日本空輸、日本フライングサービスの、東邦航空、日本郵船、商船三井など多くの会社の協力を得ました。関係者の皆様に深く感謝申し上げます。

## 参 考 文 献

- Adel, A., 1938 : Further detail in the rock-salt prismatic solar spectrum. *Astrophys. J.*, **88**, 186-188.
- Aoki, S., T. Nakazawa, S. Murayama and S. Kawaguchi, 1992 : Measurements of atmospheric methane at the Japanese Antarctic station, Syowa. *Tellus*, **44B**, 273-281.
- Aoki, S., T. Nakazawa, T. Machida, S. Sugawara, S. Morimoto, G. Hashida, T. Yamanouchi, K. Kawamura and H. Honda, 2003 : Carbon dioxide variations in the stratosphere over Japan, Scandinavia and Antarctica. *Tellus*, **55B**, 178-186.
- Blake, R. D. and F.S. Rowland, 1988 : Continuing worldwide increase in tropospheric methane, 1978-1987. *Science*, **239**, 1129-1131.
- Callendar, G. S., 1958 : On the amount of carbon dioxide in the atmosphere. *Tellus*, **10**, 243-248.
- Denning, A. S., I. Y. Fung and D. Randall, 1995 : Latitudinal gradient of atmospheric CO<sub>2</sub> due to seasonal exchange with land biota. *Nature*, **376**, 240-243.
- Engel, A., T. Möbius, H. Bönisch, U. Schmidt, R. Heinz, I. Levin, E. Atlas, S. Aoki, T. Nakazawa, S. Sugawara, F. Moore, D. Hurst, J. Elkins, S. Schauffler, A. Andrews and K. A. Boering, 2009 : Age of stratospheric air unchanged within uncertainties over the past 30 years. *Nature Geosci.*, **2**, 28-31.
- Friedlingstein, P., R. A. Houghton, G. Marland, J. Hackler, T. A. Boden, T. J. Conway, J. G. Canadell, M. R. Raupach, P. Ciais and C. Le Quéré, 2010 : Update on CO<sub>2</sub> emissions. *Nature Geosci.*, **3**, 811-812.
- Gamo, T., M. Tsutsumi, H. Sakai, T. Nakazawa, M. Tanaka, H. Honda, H. Kubo and T. Itoh, 1989 : Carbon and oxygen isotopic ratios of carbon dioxide of a stratospheric profile over Japan. *Tellus*, **41B**, 127-133.
- Goody, R. M. and C. D. Walshaw, 1953 : The origin of atmospheric nitrous oxide. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, **79**, 496-500.
- Goto, D., S. Morimoto, S. Ishidoya, S. Aoki and T. Nakazawa, 2013 : Development of a high precision continuous measurement system for measuring atmospheric O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> ratio and its application at Aobayama, Sendai, Japan. *J. Meteor. Soc. Japan*, in press.
- Griffith, D. W. T., 1982 : Calculations of carrier gas effects in non-dispersive infrared analyzers I. Theory. *Tellus*, **34**, 376-384.
- Gurney, K. R., R. M. Law, A. S. Denning, P. J. Rayner, D. Baker, P. Bousquet, L. Bruhwiler, Y.-H. Chen, P. Ciais, S. Fan, I. Y. Fung, M. Gloor, M. Heimann, K. Higuchi, J. John, T. Maki, S. Maksyutov, K. Masarie, P. Peylin, M. Prather, B. C. Pak, J. Randerson, J. Sarmiento, S. Taguchi, T. Takahashi and C. W. Yuen, 2002 : Towards robust regional estimates of CO<sub>2</sub> sources and sinks using atmospheric transport models. *Nature*, **415**, 626-630.
- Gurney, K. R., R. M. Law, A. S. Denning, P. J. Rayner, B. C. Pak and the TransCom 3 L2 modelers, 2004 : Transcom 3 inversion intercomparison : Model mean results for the estimation of seasonal carbon sources and sinks. *Glob. Biogeochem. Cycles*, **18**, GB1010, doi:10.1029/2003GB002111.
- Honda, H., S. Aoki, T. Nakazawa, S. Morimoto and N. Yajima, 1996 : Cryogenic air sampling system for measurements of the concentrations of stratospheric trace gases and their isotopic ratios over Antarctica. *J. Geomagn. Geoelectr.*, **48**, 1145-1155.
- IPCC, 2007 : Climate Change 2007 : The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the IPCC, Cambridge Univ. Press, 996pp.

- Ishidoya, S., S. Aoki and T. Nakazawa, 2003 : High precision measurements of the atmospheric  $O_2/N_2$  ratio on a mass spectrometer. *J. Meteor. Soc. Japan*, **81**, 127-140.
- Ishidoya, S., S. Sugawara, G. Hashida, S. Morimoto, S. Aoki, T. Nakazawa and T. Yamanouchi, 2006 : Vertical profiles of the  $O_2/N_2$  ratio in the stratosphere over Japan and Antarctica. *Geophys. Res. Lett.*, **33**, L13701, doi:10.1029/2006GL025886.
- Ishidoya, S., S. Sugawara, S. Morimoto, S. Aoki and T. Nakazawa, 2008 : Gravitational separation of major atmospheric components of nitrogen and oxygen in the stratosphere. *Geophys. Res. Lett.*, **35**, L03811, doi: 10.1029/2007GL030456.
- Ishidoya, S., S. Aoki, D. Goto, T. Nakazawa, S. Taguchi and P. K. Patra, 2012 ; Time and space variations of the  $O_2/N_2$  ratio in the troposphere over Japan and estimation of the global  $CO_2$  budget. *Tellus*, **64B**, 18964, <http://dx.doi.org/10.3402/tellusb.v64i0.18964>.
- Ishijima, K., T. Nakazawa, S. Sugawara, S. Aoki and T. Saeki, 2001 : Concentration variations of tropospheric nitrous oxide over Japan. *Geophys. Res. Lett.*, **28**, 171-174.
- Ishijima, K., S. Sugawara, K. Kawamura, G. Hashida, S. Morimoto, S. Murayama, S. Aoki and T. Nakazawa, 2007 : Temporal variations of the atmospheric nitrous oxide concentration and its  $\delta^{15}N$  and  $\delta^{18}O$  for the latter half of the 20th century reconstructed from firn air analyses. *J. Geophys. Res.*, **112**, D03305, doi: 10.1029/2006JD007208.
- Ishijima, K., T. Nakazawa and S. Aoki, 2009 : Variations of atmospheric nitrous oxide concentration in the northern and western Pacific. *Tellus*, **61B**, 408-415.
- Kawamura, K., F. Parrenin, L. Liseiecki, R. Uemura, F. Vimeux, J. P. Severinghaus, M. A. Hutterli, T. Nakazawa, S. Aoki, J. Jouzel, M. E. Raymo, K. Matsumoto, H. Nakata, H. Motoyama, S. Fujita, K. Goto-Azuma, Y. Fujii and O. Watanabe, 2007 : Northern Hemisphere forcing of climatic cycles in Antarctica over the past 360,000 years. *Nature*, **448**, 912-916.
- Keeling, C. D., R. B. Bacastow, A. E. Bainbridge, C. A. Ekdahl, Jr., P. R. Guenther, L. S. Waterman and J. F. S. Chin, 1976a : Atmospheric carbon dioxide variations at Mauna Loa Observatory, Hawaii. *Tellus*, **28**, 538-551.
- Keeling, C. D., J. A. Adams, Jr., C. A. Ekdahl, Jr. and P. R. Guenther, 1976b : Atmospheric carbon dioxide variations at the South Pole. *Tellus*, **28**, 552-564.
- Keeling, R. F. and S. R. Shertz, 1992 : Seasonal and interannual variations in atmospheric oxygen and implications for the global carbon cycle. *Nature*, **358**, 723-727.
- Le Quéré, C., C. Rödenbeck, E. T. Buitenhuis, T. J. Conway, R. Langenfelds, A. Gomez, C. Labuschagne, M. Ramonet, T. Nakazawa, N. Metzl, N. Gillett and M. Heimann, 2007 : Saturation of the Southern Ocean  $CO_2$  sink due to recent climate change. *Science*, **316**, 1735-1738.
- Machida, T., T. Nakazawa, Y. Fujii, S. Aoki and O. Watanabe, 1995 : Increase in the atmospheric nitrous oxide concentration during the last 250 years. *Geophys. Res. Lett.*, **22**, 2921-2924.
- Machida, T., H. Matsueda, Y. Sawa, Y. Nakagawa, K. Hirokuni, N. Kondo, K. Goto, T. Nakazawa, K. Ishikawa and T. Ogawa, 2008 : Worldwide measurements of atmospheric  $CO_2$  and other trace gas species using commercial airlines. *J. Atmos. Ocean. Technol.*, **25**, 1744-1754.
- Matsueda, H., H. Yoshikawa-Inoue and M. Ishii, 2002 : Aircraft observation of carbon dioxide at 8-13 km altitude over the western Pacific from 1993 to 1999. *Tellus*, **54B**, 1-22.
- McMath, R. R., O. C. Mohler and L. Goldberg, 1949 : Telluric bands of  $CH_4$  in the solar spectrum. *Astrophys. J.*, **109**, 17-27.
- Metzl, N., C. Brunet, A. Jabaud-Jan, A. Poisson and B. Schauer, 2006 : Summer and winter air-sea  $CO_2$  fluxes in the Southern Ocean. *Deep-Sea Res. I*, **53**, 1548-1563.
- Migeotte, M. V., 1948 : Methane in the Earth's atmosphere. *Astrophys. J.*, **107**, 400-403.
- Morimoto, S., T. Nakazawa, K. Higuchi and S. Aoki, 2000 : Latitudinal distribution of atmospheric  $CO_2$  sources and sinks inferred by  $\delta^{13}C$  measurements from 1985 to 1991. *J. Geophys. Res.*, **105**, 24315-24326.
- Morimoto, S., S. Aoki, T. Nakazawa and T. Yamanouchi, 2006 : Temporal variations of the carbon isotopic ratio of atmospheric methane observed at Ny Ålesund, Svalbard from 1996 to 2004. *Geophys. Res. Lett.*, **33**, L01807, doi:10.1029/2005GL024648.
- Nakaoka, S., S. Aoki, T. Nakazawa, G. Hashida, S. Morimoto, T. Yamanouchi and H. Yoshikawa-Inoue, 2006 : Temporal and spatial variations of oceanic  $pCO_2$  and air-sea  $CO_2$  flux in the Greenland Sea and the Barents Sea. *Tellus*, **58B**, 148-161.
- Nakazawa, T., K. Miyashita, S. Aoki and M. Tanaka, 1991 : Temporal and spatial variations of upper



- tropospheric and lower stratospheric carbon dioxide. *Tellus*, **43B**, 106-117.
- Nakazawa, T., S. Murayama, K. Miyashita, S. Aoki and M. Tanaka, 1992 : Longitudinally different variations of lower tropospheric carbon dioxide concentrations over the North Pacific Ocean. *Tellus*, **44B**, 161-172.
- Nakazawa, T., S. Morimoto, S. Aoki and M. Tanaka, 1993a : Time and space variations of the carbon isotopic ratio of tropospheric carbon dioxide over Japan. *Tellus*, **45B**, 258-274.
- Nakazawa, T., T. Machida, K. Esumi, M. Tanaka, Y. Fujii, S. Aoki and O. Watanabe, 1993b : Measurements of CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> concentrations in air in polar ice core. *J. Glaciol.*, **39**, 209-215.
- Nakazawa, T., T. Machida, M. Tanaka, Y. Fujii, S. Aoki and O. Watanabe, 1993c : Differences of the atmospheric CH<sub>4</sub> concentration between the Arctic and Antarctic regions in pre-industrial/pre-agricultural era. *Geophys. Res. Lett.*, **20**, 943-946.
- Nakazawa, T., T. Machida, S. Sugawara, S. Murayama, S. Morimoto, G. Hashida, H. Honda and T. Itoh, 1995 : Measurements of the stratospheric carbon dioxide concentration over Japan using a balloon-borne cryogenic sampler. *Geophys. Res. Lett.*, **22**, 1229-1232.
- Nakazawa, T., S. Morimoto, S. Aoki and M. Tanaka, 1997 : Temporal and spatial variations of the carbon isotopic ratio of atmospheric carbon dioxide in the western Pacific region. *J. Geophys. Res.*, **102**, 1271-1285.
- Nakazawa, T., S. Aoki, K. Kawamura, T. Saeki, S. Sugawara, H. Honda, G. Hashida, S. Morimoto, N. Yoshida, S. Toyoda, Y. Makide and T. Shirai, 2002 : Variations of stratospheric trace gases measured using a balloon-borne cryogenic sampler. *Adv. Space Res.*, **30**, 1349-1357.
- Neftel, A., E. Moor, H. Oeschger and B. Stauffer, 1985 : Evidence from polar ice cores for the increase in atmospheric CO<sub>2</sub> in the past two centuries. *Nature*, **315**, 45-47.
- Oeschger, H., U. Siegenthaler, U. Schotterer and A. Gugelmann, 1975 : A box diffusion model to study the carbon dioxide exchange in nature. *Tellus*, **27**, 168-192.
- Patra, P. K., M. Ishizawa, S. Maksyutov, T. Nakazawa and G. Inoue, 2005a : Role of biomass burning and climate anomalies for land-atmosphere carbon fluxes based on inverse modeling of atmospheric CO<sub>2</sub>. *Glob. Biogeochem. Cycles*, **19**, GB3005, doi:10.1029/2004GB002258.
- Patra, P. K., S. Maksyutov, M. Ishizawa, T. Nakazawa, T. Takahashi and J. Ukita, 2005b : Interannual and decadal changes in the sea-air CO<sub>2</sub> flux from atmospheric CO<sub>2</sub> inverse modeling. *Glob. Biogeochem. Cycles*, **19**, GB4013, doi:10.1029/2004GB002257.
- Rohs, S., C. Schiller, M. Riese, A. Engel, U. Schmidt, T. Wetter, I. Levin, T. Nakazawa and S. Aoki, 2006 : Long-term changes of methane and hydrogen in the stratosphere in the period 1978-2003 and their impact on the abundance of stratospheric water vapor. *J. Geophys. Res.*, **111**, D14315, doi:10.1029/2005JD006877.
- Stephens, B. B., K. R. Gurney, P. P. Tans, C. Sweeney, W. Peters, L. Bruhwiler, P. Ciais, M. Ramonet, P. Bousquet, T. Nakazawa, S. Aoki, T. Machida, G. Inoue, N. Vinnichenko, J. Lloyd, A. Jordan, M. Heimann, O. Shibistova, R. L. Langenfelds, L. P. Steele, R. J. Francey and A. S. Denning, 2007 : Weak northern and strong tropical land carbon uptake from vertical profiles of atmospheric CO<sub>2</sub>. *Science*, **316**, 1732-1735.
- Sugawara, S., T. Nakazawa, G. Inoue, T. Machida, H. Mukai, N. K. Vinnichenko and V. U. Khattatov, 1996 : Aircraft measurements of the stable carbon isotopic ratio of atmospheric methane over Siberia. *Glob. Biogeochem. Cycles*, **10**, 223-231.
- Sugawara, S., T. Nakazawa, Y. Shirakawa, K. Kawamura, S. Aoki, T. Machida and H. Honda, 1997 : Vertical profile of the carbon isotopic ratio of stratospheric methane over Japan. *Geophys. Res. Lett.*, **24**, 2989-2992.
- Takahashi, T., S. C. Sutherland, C. Sweeney, A. Poisson, N. Metzl, B. Tilbrook, N. Bates, R. Wanninkhof, R. A. Feely, C. Sabine, J. Olafsson and Y. Nojiri, 2002 : Global sea-air CO<sub>2</sub> flux based on climatological surface ocean pCO<sub>2</sub>, and seasonal biological and temperature effects. *Deep-Sea Res. II*, **49**, 1601-1622.
- Takahashi, T., S. C. Sutherland, R. Wanninkhof, C. Sweeney, R. A. Feely, D. W. Chipman, B. Hales, G. Friederich, F. Chaves, C. Sabine, A. Watson, D. C. E. Bakker, U. Schuster, N. Metzl, H. Yoshikawa-Inoue, M. Ishii, T. Midorikawa, Y. Nojiri, A. Körtzinger, T. Steinhoff, M. Hoppema, J. Olafsson, T. S. Arnarson, B. Tilbrook, T. Johannessen, A. Olsen, R. Bellerby, C. S. Wong, B. Delille, N. R. Bates and H. J. W. de Baar, 2009 : Climatological mean and decadal change in surface ocean pCO<sub>2</sub>, and net sea-air CO<sub>2</sub> flux over the

- global oceans. *Deep-Sea Res. II*, **56**, 554-577.
- Tanaka, M., T. Nakazawa and S. Aoki, 1983 : High quality measurements of the concentration of atmospheric carbon dioxide. *J. Meteor. Soc. Japan*, **61**, 678-685.
- Tanaka, M., T. Nakazawa and S. Aoki, 1987 : Seasonal and meridional variations of atmospheric carbon dioxide in the lower troposphere of the northern and southern hemispheres. *Tellus*, **39B**, 29-41.
- Tanaka, M., T. Nakazawa, S. Aoki and H. Ohshima, 1988 : Aircraft measurements of tropospheric carbon dioxide over the Japanese islands. *Tellus*, **40B**, 16-22.
- Tans, P. P., T. J. Conway and T. Nakazawa, 1989 : Latitudinal distribution of the sources and sinks of atmospheric carbon dioxide derived from surface observations and an atmospheric transport model. *J. Geophys. Res.*, **94**, 5151-5172.
- Toyoda, S., N. Yoshida, T. Urabe, S. Aoki, T. Nakazawa, S. Sugawara and H. Honda, 2001 : Fractionation of N<sub>2</sub>O isotopomers in the stratosphere. *J. Geophys. Res.*, **106**, 7515-7522.
- Umezawa, T., S. Aoki, T. Nakazawa and S. Morimoto, 2009 : A high-precision measurement system for carbon and hydrogen isotopic ratios of atmospheric methane and its application to air samples collected in the western Pacific region. *J. Meteor. Soc. Japan*, **87**, 365-379.
- Volz-Thomas, A., J.-P. Cammas, C. A. M. Brenninkmeijer, T. Machida, O. Cooper, C. Sweeney and A. Waibel, 2009 : Civil aviation monitors air quality and climate. *EM Mag.*, Air & Waste Management Association, October 2009, 16-19.
- Weiss, R. F., 1981 : The temporal and spatial distribution of tropospheric nitrous oxide. *J. Geophys. Res.*, **86**, 7185-7195.
- Yashiro, H., S. Sugawara, K. Sudo, S. Aoki and T. Nakazawa, 2009 : Temporal and spatial variations of carbon monoxide over the western part of the Pacific Ocean. *J. Geophys. Res.*, **114**, D08305, doi:10.1029/2008JD010876.

---

## Global Variations and Cycles of Greenhouse Gases - My Research Journey Towards Understanding -

Takakiyo NAKAZAWA \*

\* *Professor Emeritus of Tohoku University.*

*E-mail : nakazawa@m.tohoku.ac.jp*

(Received 1 October 2012 ; Accepted 17 December 2012)

---